

УДК 621.315.592

Установление степени упорядочения структуры материалов на основе расчета информационно-корреляционных характеристик

© С.П. Вихров[¶], Т.Г. Авачева, Н.В. Бодягин, Н.В. Гришанкина, А.П. Авачев

Рязанский государственный радиотехнический университет,
390005 Рязань, Россия

(Получена 22 сентября 2011 г. Принята к печати 23 сентября 2011 г.)

Описан новый метод анализа процессов самоорганизации в твердотельных материалах путем расчета корреляционно-информационных характеристик поверхности, в частности, средней взаимной информации. Предложены критерии определения степени упорядочения структуры поверхности, которые апробированы на экспериментальных полупроводниковых структурах моно-, поли- и аморфного кремния. Установлены зависимости информационных характеристик пленок неупорядоченных полупроводников от технологических режимов получения.

1. Введение

В настоящее время все более острой становится проблема создания сложных устройств микро- и нанoeлектроники. Однако основным фактором, сдерживающим развитие технологии производства, являются трудности получения и контроля структур с воспроизводимыми свойствами.

На современном этапе развития физики и технологии наибольшие успехи были достигнуты в исследовании монокристаллического состояния вещества. Однако область применения неупорядоченных полупроводников постоянно растет благодаря их уникальным свойствам [1]. При этом процессы структурообразования неупорядоченных полупроводников подчиняются не до конца изученным на данный момент законам.

Неупорядоченные материалы могут формироваться с помощью процессов самоорганизации, использование которых, вероятно, станет технологической основой многих методов получения структур нанoeлектроники.

Традиционные методы не позволяют описать сложное строение вещества, не принимают во внимание важнейшее качество структуры — ее целостность. В данной работе предлагается новый подход к описанию процессов образования неупорядоченных структур — это рассмотрение таких процессов с позиции теории сложных систем. Данный подход предоставляет совершенно новые возможности обнаружения детерминированного поведения таких систем, что недоступно для существующих на сегодняшний день методов исследования.

В этой связи была поставлена цель — исследование процессов самоорганизации в неупорядоченных материалах, разработка эффективного метода диагностики структуры поверхности с применением теории информации, а также способа определения степени упорядочения структуры материалов.

2. Теоретические основы метода анализа структуры по оценке информационно-корреляционных характеристик

При самоорганизации в системе без специфического воздействия извне создаются и поддерживаются коллективные свойства, в частности в твердом теле возникают дальнедействующие корреляции в структуре. Как было показано ранее [2], поверхность выращиваемого материала представляет собой „замороженный“ мгновенный снимок процессов роста. Следовательно, степень воспроизводимости параметров твердотельных материалов можно оценить по корреляциям в структуре его поверхности. Неупорядоченная структура характеризуется ближним порядком в расположении атомов, в кристаллах же корреляции проявляются в виде среднего и дальнего порядка.

Большинство существующих методов анализа упорядоченности структуры поверхности является линейным, и в качестве исходных данных использует изображения поверхности, которые можно получить различными видами сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ). Однако все они имеют недостатки при анализе динамических систем. Так, фурье-анализ неприменим для исследования нерегулярных систем, их частотные спектры широкие и сплошные, поэтому невозможно отличить случайное поведение от детерминированного. Автокорреляционная функция (АФК) не позволяет точно определить размеры характерных структур и выявить скрытый порядок в структуре поверхности. Вейвлет-преобразование, хотя и позволяет получить распределение сигнала как по частоте, так и по времени, но также не выявляет скрытый порядок в структуре и не учитывает динамические особенности системы.

Степень хаотичности системы можно охарактеризовать показателями Ляпунова. Однако они вычисляются для линейных систем, для которых построена модель.

[¶] E-mail: mel@rsreu.ru

Реальные системы, такие как структура неупорядоченного полупроводника, описываются сложными нелинейными уравнениями, и показатели Ляпунова рассчитать трудно.

В связи с этим необходима разработка метода исследования порядка в структуре поверхности, позволяющего адекватно оценивать динамические особенности системы роста материала. Предлагаемый метод исследования порядка построен на основе метода вложения Такенса для анализа нелинейных систем, а также на теории информации.

Метод Такенса, первоначально разработанный для исследования поведения систем, изменяющих свое состояние во времени, был адаптирован для изучения пространственно-распределенных систем, в частности, поверхностей материалов.

При этом учитывалась важная особенность исследования процессов роста — то, что их динамика может быть частично восстановлена по уже сформированной структуре, т.е. с помощью пространственных серий (r -серий). Это связано с тем, что структура „хранит“ информацию о своей предыдущей эволюции на временах, меньших, чем время корреляций. В качестве измеряемой переменной была выбрана высота профиля поверхности, отсчитываемая от некоторого уровня, принятого за нулевой. Она однозначно характеризует распределение вещества по поверхности, которая представляет собой мгновенный снимок процессов роста, а значит, отражает процессы пространственно-временной эволюции.

Использование r -серий более всего оправдано для технологий выращивания материала из газовой фазы. В этом случае граница роста является поверхностью. Использование временных серий (t -серий) предпочтительнее для технологий, в которых реализуется переход расплав–твердое тело, поскольку трудно определить пространственное распределение именно на границе роста. Полное описание эволюции пространственно-временной системы может быть достигнуто, если реконструировать временную эволюцию мгновенных снимков обычным путем.

Как было показано ранее, процессы роста неупорядоченных полупроводников имеют все основные признаки самоорганизующихся систем. Вообще система называется самоорганизующейся, если она без специфического воздействия извне обретает пространственную, временную или функциональную структуру, приобретает новые коллективные свойства, которыми изначально не обладают ее элементы. Эти свойства проявляются в виде корреляций, т.е. создаются и поддерживаются воспроизводимые взаимоотношения между удаленными частями системы. Поэтому в совокупности с методом Такенса для исследования самоорганизации применялись математические методы (в частности, теория информации), направленные на выявление действующих корреляций как главного признака наличия самоорганизации в процессе синтеза материала [2].

Двумерное распределение корреляций по поверхности, возникающих в результате нелинейных процессов,

может быть получено по расчету средней взаимной информации (СВИ) между точками поверхности. Ранее была разработана методика расчета СВИ для поверхности, реализованная в виде программного обеспечения [3]. Напомним, что СВИ между произвольной парой точек A и B :

$$\forall A(x_1, y_1), B(x_2, y_2) \in DI(A, B)$$

$$= \iint_{z^2} p_{AB}(z_1, z_2) \log_2 \left[\frac{p_{AB}(z_1, z_2)}{p_A(z_1)p_B(z_2)} \right] dz, \quad (1)$$

где z — случайная величина, высота профиля поверхности материала в точке с координатами (x, y) ; D — область определения случайной величины z (плоскость образца); Z — область значений случайной величины z (высоты профиля точек поверхности); $p_A(z_1)$, $p_B(z_2)$ — вероятности того, что случайная величина, отвечающая высоте профиля, принимает в точках A и B значение z_1 и z_2 ; $p_{AB}(z_1, z_2)$ — совместная вероятность одновременного принятия заданных значений в двух точках.

Значение СВИ позволяет оценить нелинейные корреляции между высотами точек поверхности. СВИ нормирована по максимальному значению для данного массива данных и поэтому лежит в диапазоне от 0 до 1.

Расчет проводился для СВИ по вектору между двумя точками. Чем ярче точка на распределении, тем больше СВИ между всеми точками поверхности исходного образца, которые можно соединить вектором с соответствующей длиной и направлением. Критерием присутствия корреляции между точками исследуемого образца считаем наличие максимумов на графике распределения СВИ по вектору. По локальным максимумам на параметризованном распределении СВИ можно определить расстояния и направления корреляций в структуре поверхности материала [4]. При этом двумерное представление СВИ для анализа поверхности материала использовано впервые.

Таким образом, в данной работе предлагается новый метод, основанный на построении двумерного распределения средней взаимной информации (СВИ), которая в отличие от остальных методов описывает структуру в целом. Показано, что анализ порядка в структуре поверхности по данным атомно-силовой микроскопии (АСМ) о профиле поверхности с применением методов нелинейной динамики и теории информации, позволяет определять степень упорядоченности наноструктур с достаточно высокой точностью. Погрешности определения СВИ связаны с дискретизацией значений высот профиля и с погрешностью измерений АСМ методами и составляет менее 5%.

3. Разработка критериев для оценки степени упорядочения структуры

Данная методика была протестирована на модельных поверхностях и доказала свою эффективность в

Таблица 1. Характеристики тестовых моделей поверхностей материалов

Название тестовой модели	СВИ, отн. ед.		
	минимальное значение	максимальное значение	среднее значение
„Белый шум“	0.004	0.052	0.015
„Вязкая пластина“	0.024	0.212	0.067
„Перенос информации“	0.003	0.046	0.011
„Синусоидальная решетка“	0.055	1.000	0.135
„Кластеры“	0.025	0.625	0.076

Таблица 2. Критерии степени порядка на основе СВИ

Тип поверхности	СВИ, отн. ед.		
	минимальное значение	максимальное значение	среднее значение
Хаотическая	0–0.01	0–0.1	0–0.03
Слабоорганизованная (присутствуют элементы организации структуры)	0.01–0.03	0.1–0.67	0.03–0.1
Упорядоченная поверхность	0.03–1	0.67–1	0.1–1

Таблица 3. Результаты расчета СВИ для α -Si:H, поли- и монокристаллического кремния

Образцы	СВИ, отн. ед.		
	минимальное значение	максимальное значение	среднее значение
α -Si:H	0.006	0.053	0.025
<i>p</i> -Si (α -Si:H, нагретый до 600°C)	0.009	0.66	0.033
Single-Si	0.367	0.763	0.577

исследовании самоорганизующихся структур на основе неупорядоченных полупроводников, она позволяет не только качественно, но и количественно характеризовать степень упорядочения структуры. Исследовались модели поверхностей, во-первых, заведомо исключающие корреляцию на дальних масштабах, во-вторых, с полностью регулярной структурой. Основные расчетные характеристики тестов приведены в табл. 1 [3]. На основе исследования тестовых моделей поверхностей материалов были предложены критерии степени упорядочения структуры материала (табл. 2).

Численные критерии регламентируют значения минимальной, средней и максимальной СВИ. Экспериментально критерии подтверждались с помощью разработанной методики расчета СВИ при исследовании структуры тонкопленочных слоев кристаллического, поликристаллического и аморфного гидрогенизированного кремния (α -Si:H).

Для образцов на основе кремния определены основные характеристики микрорельефа, проведен анализ островков на поверхности и расчет информационных характеристик (рис. 1). В табл. 3 представлены численные значения СВИ для образцов, принадлежащих трем категориям с различной степенью порядка структуры.

На поле СВИ для образцов α -Si:H нет явных максимумов СВИ. Значения СВИ распределены равномерно,

причем анализ распределения СВИ показывает, что за пределами центрального пика СВИ составляет сотые доли единиц. Таким образом, значения СВИ для аморфного материала попадают в категорию критериев степени порядка, соответствующую хаотической структуре поверхности:

$$I_{\min} < 0.1, \quad I_{\max} < 0.1, \quad I_{\text{авг}} < 0.03.$$

Результаты исследования образцов поли-Si (образцы получены нагреванием α -Si:H до 600°C) указывают на появление корреляций в системе, так как по сравнению с α -Si:H значение СВИ увеличилось для всех образцов серии. То, что структура становится более упорядоченной, подтверждается и исследованием статистическими методами.

Таким образом, значения СВИ для поликристаллического материала попадают в промежуточную категорию критериев степени порядка, соответствующую структуре поверхности с элементами организации:

$$0.01 < I_{\min} < 0.03, \quad 0.1 < I_{\max} < 0.67, \quad 0.03 < I_{\text{авг}} < 0.1.$$

Результаты по исследованию образцов монокристаллического кремния¹ говорят о присутствии дальнедей-

¹ Изображение и образец получены Е.Е. Родякиной и др. (Институт физики полупроводников СО РАН, Россия).

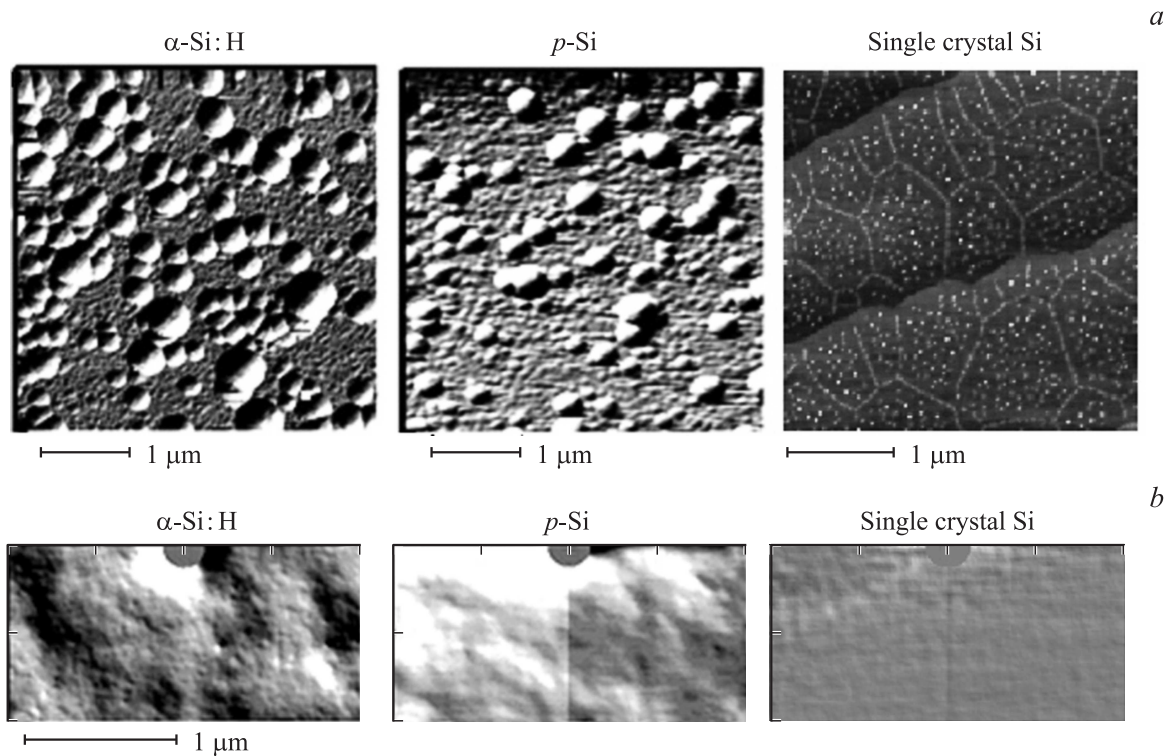


Рис. 1. АСМ-изображение поверхности (а) и двумерное распределение СВИ по вектору (б) для аморфных, поли- и монокристаллических образцов на основе кремния.

ствующих корреляций в системе, которые свидетельствуют о наличии порядка как результата процессов самоорганизации. Данная группа образцов подтверждает определенный теоретический диапазон критериальных значений СВИ для упорядоченной структуры:

$$I_{\min} > 0.03, \quad I_{\max} > 0.67, \quad I_{\text{avr}} > 0.1.$$

Таким образом, полученные значения СВИ для всех типов структур подтверждают теоретически установленные критерии степени порядка структуры поверхности материала. В результате теоретических расчетов показано, что вероятность достоверной идентификации наноструктур случайного, слабоорганизованного и упорядоченного типов при использовании предложенных критериев составляет 0.92.

4. Взаимосвязь информационно-корреляционных характеристик структуры и технологических параметров получения неупорядоченных полупроводников

Получение полупроводников в аморфном состоянии определяется физико-химическими свойствами материалов и характером фазового перехода жидкость–твердое тело. Для неупорядоченных полупроводников характерна сильная взаимосвязь между способом получения

материала и его структурными, электрофизическими и другими свойствами. При этом можно выявить взаимосвязь информационно-корреляционных параметров и режимов получения полупроводников.

Одним из параметров, определяющих воспроизводимость свойств материала, является температура подложки при осаждении пленки. В зависимости от нее могут происходить более или менее эффективные процессы перераспределения энергии и упорядочения в растущем слое. Температура подложки является важнейшим технологическим параметром, характеризующим как свойства аморфного материала, так и границы раздела. Она оказывает влияние на механизмы роста пленок, изменяя поверхностную подвижность химически-активных частиц, с изменением температуры подложки связывается и изменение механизма релаксации внутренних напряжений. Существует диапазон оптимальных температур подложки, при которых формируется структура материала, наиболее близкая к равновесной.

В данной работе проведены исследования образцов α -Si:H, полученных при различной температуре подложек, осажденных на стекло, и проводящий прозрачный слой на основе In_2O_3 (ITO) [5]. Для всех групп образцов можно констатировать, что АКФ имеет характер, сходный с тестовыми случайными поверхностями. СВИ в целом довольно гладкая функция, а средние значения также соответствуют хаотическим поверхностям. Таким образом, данные поверхности в первом приближении можно считать хаотическими. Численные значения СВИ

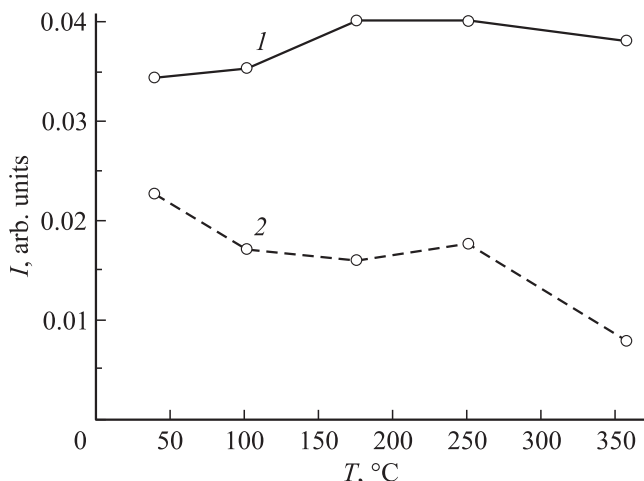


Рис. 2. Зависимость СВИ образцов α -Si:H от температуры подложки (при сохранении отношения $\Delta T/\Delta P$): 1 — на стекле, 2 — на проводящем слое.

выше для образцов на стекле, а изменение температуры подложки на них сказывается незначительно. Таким образом, на стеклянной подложке формируется более упорядоченная структура аморфного материала.

При сравнительном анализе результатов по сериям образцов, полученных в различных технологических условиях, выявляются следующие закономерности.

С увеличением температуры подложки (с пропорциональным увеличением давления в камере) для слоев α -Si:H, нанесенных на проводящий слой ИТО и на стеклянную подложку, наблюдается уменьшение СВИ (рис. 2). Для данной серии образцов типичные статистические характеристики, широко применяемые для параметризации структуры материалов, такие как высота, диаметр островков и шероховатость поверхности, остаются неизменными, однако изменение СВИ говорит о том, что структуры все же различны. Об этом же свидетельствует и изменение электрофизических свойств (плотность локализованных состояний на равновесном уровне Ферми уменьшается в среднем с $1.7 \cdot 10^{17}$ до $3.8 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3} \text{ эВ}^{-1}$, оптическая ширина запрещенной зоны увеличивается с 1.66 до 1.72 эВ) [6]. Такие результаты (уменьшение СВИ между различными частями образца и изменение электрофизических свойств) могут быть обусловлены тем, что с увеличением $\Delta T/\Delta P$ в реакторе изменяется соотношение радикалов метана, скорость осаждения пленки увеличивается. Таким образом, применение разработанного метода позволяет выявить изменение структуры при изменении технологических факторов. Это влияние не обнаруживается при использовании известных методов анализа микроструктуры с применением таких характеристик, как арифметическая шероховатость, средняя высота и диаметр островков.

Также важным технологическим параметром является время осаждения и соответственно толщина пленки материала. Толщина пленки влияет на степень поглощения излучения, напряженность внутреннего поля для эффек-

тивного сбора фотогенерированных носителей заряда, на ослабление деградиционных явлений, связанных с поглощением излучения. Поэтому очень важно подобрать такие толщины пленок, при которых бы наблюдались равномерность получаемых слоев, и в то же время необходима максимальная величина оптической ширины запрещенной зоны при минимальной концентрации ионизованных поверхностных и объемных состояний.

Для установления взаимосвязи времени осаждения с информационными характеристиками пленок были исследованы образцы пленок α -Si:H, также осажденных на два вида подложек. При увеличении времени осаждения пленки на слой ИТО наблюдается рост СВИ (рис. 3). Это означает, что при увеличении толщины d пленки

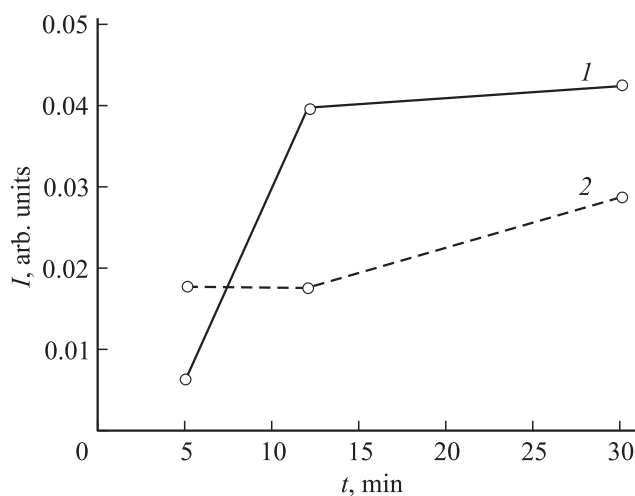


Рис. 3. Зависимость СВИ для пленок α -Si:H от времени осаждения на подложку: 1 — на стекле, 2 — на проводящем слое.

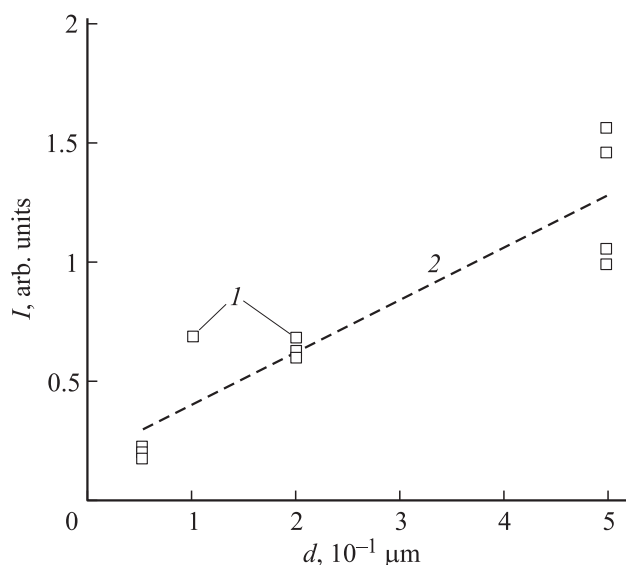


Рис. 4. Зависимость СВИ от толщины пленки ГСП ($\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$) после отделения микро рельефа царапин от нанорельефа поверхности: 1 — экспериментальные значения, 2 — аппроксимация.

уменьшается влияние подложки. При этом на картине СВИ проявляется более ровный рельеф. Возникают пики СВИ на дальних расстояниях, что свидетельствует о возникновении дальних корреляций. При этом разница максимального и минимального значения высоты профиля снижается. Таким образом, с увеличением времени осаждения пленки ослабляется степень влияния подложки, усиливаются корреляции, формируется более равномерная упорядоченная пленка α -Si:H.

Аналогичные выводы можно сделать и по результатам исследования пленок халькогенидных стеклообразных полупроводников ($\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$) с толщиной нижнего электрода 50, 100, 200 и 500 нм в зависимости от толщины d напыленной пленки.

На рис. 4 представлена полученная зависимость величины СВИ от толщины пленки, которая свидетельствует о возникновении дальнедействующих корреляций на поверхности.

С ростом толщины поверхность пленки все меньше повторяет структуру подложки, и на ней появляются дальнедействующие корреляции.

5. Заключение

Для исследования пространственно-распределенных систем, полученных в результате процессов самоорганизации, необходимо применять специальные методики и характеристики, учитывающие коллективные свойства этих объектов.

Разработанный метод исследования самоорганизации в неупорядоченных материалах, основанный на информационной теории систем, выявляет дальнедействующие корреляции в структуре поверхности, которые свидетельствуют о присутствии в ней упорядоченности.

Методика расчета двумерного распределения средней взаимной информации (СВИ) дает адекватные оценки динамики систем разного типа, расширяет возможности атомно-силовой микроскопии (АСМ) и может быть использована как средство контроля за структурными параметрами приборов нанoeлектроники. На основе результатов тестирования методики предложены численные критерии для определения степени порядка структуры поверхности, регламентирующие информационно-корреляционные характеристики для случайной, слабоорганизованной и упорядоченной наноструктур.

Проведено экспериментальное исследование образцов соединений кремния различной структурной организации, установлено соответствие теоретических предположений и экспериментальных результатов.

Проведены исследования структуры поверхности нелегированных пленок α -Si:H, полученных методом низкочастотного (55 кГц) тлеющего разряда, а также пленок ХСП в зависимости от температуры осаждения и времени осаждения на подложку. Показана способность методики выявлять изменение структуры под действием технологических факторов, что не удается сделать традиционными методами. При этом применение метода

СВИ позволяет определить оптимальные условия роста и найти критерии, характеризующие степень воспроизводимости выращиваемых материалов.

В целом в применении к нелинейным системам, т.е. самоорганизующейся системе, метод СВИ имеет существенное преимущество перед остальными существующими методами исследования, так как позволяет получить знания о „скрытом“ порядке в структуре, обусловленном сложной динамикой системы роста. Знание эволюции материала и управляющих параметров позволит в дальнейшем не только эффективно управлять процессом роста неупорядоченных материалов, но и программировать синтез материалов для микро- и нанoeлектроники с новыми уникальными свойствами.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ.

Список литературы

- [1] А.А. Айвазов, Б.Г. Будагян, С.П. Вихров, А.И. Попов. *Неупорядоченные полупроводники* (М., Изд-во МЭИ, 1995).
- [2] Н.В. Бодягин, С.П. Вихров. Прил. к журн. „Вестник РГРТУ“, **4** (2009).
- [3] Т.Г. Авачева, Н.В. Бодягин, С.П. Вихров и др. ФТИ, **42** (5), 513 (2008).
- [4] Т.Г. Авачева, Н.В. Бодягин, С.П. Вихров, С.М. Мурсалов. *Процессы самоорганизации в неупорядоченных материалах* (Рязань, РГРТУ, 2007).
- [5] А.П. Авачев, А.С. Арефьев, Г.П. Гололобов, Д.В. Суворов. *Сканирующая зондовая микроскопия: методические указания к лабораторным работам* (Рязань, РГРТУ, 2010).
- [6] Т.Г. Авачева, С.П. Вихров, В.А. Быков, Н.В. Вишняков, К.В. Митрофанов, И.Г. Уточкин. *Сб. тр. VI Междунар. конф. „Аморфные и микрокристаллические полупроводники“* (СПб., Изд-во Политехн. ун-та, 2008) с. 32.

Редактор Л.В. Беляков

Determination of ordering degree of materials structure by calculation of information-correlation characteristics

S.P. Vikhrov, T.G. Avacheva, N.V. Bodyagin, N.V. Grishankina, A.P. Avachev

Ryazan State Radioengineering University, 390005 Ryazan, Russia

Abstract The new method of the analysis of self-organization processes in solid-state materials by calculation of information-correlation characteristics of a surface, in particular, by the average mutual information, is described. Definition criteria of ordering degree of a surface structure which are approved on experimental semiconductor structures (crystalline, polycrystalline and amorphous silicon) are offered. Dependences of information characteristics of the noncrystalline semiconductors films on growth technological modes are established.